



第一原理非平衡電子輸送計算法の開発とナノ構造への応用

著者	木 博和
学位授与大学	筑波大学 (University of Tsukuba)
学位授与年度	2013
報告番号	12102甲第6825号
URL	http://hdl.handle.net/2241/00122330

氏 名（本 籍 地）	高木 博和（新潟県）
学 位 の 種 類	博 士（工学）
学 位 記 番 号	博 甲 第 6825 号
学 位 授 与 年 月 日	平成26年 3月25日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第1項該当
審 査 研 究 科	数理物質科学研究科
学 位 論 文 題 目	

第一原理非平衡電子輸送計算法の開発とナノ構造への応用

主	査	筑波大学准教授	博士(理学)	小林伸彦
副	査	筑波大学教授	工学博士	重川秀実
副	査	筑波大学教授	博士(工学)	佐々木正洋
副	査	NECグリーンイノベーション研究所主任研究員		
			博士(理学)	広瀬賢二

論 文 の 要 旨

近年の微細加工技術の発展に伴い、原子・分子スケールでのナノ構造が作成され様々な物性が測定、解析されている。ナノ構造における特性は量子効果が顕著に現れ、量子論に基づく理論的なアプローチの発展が重要となっている。特にナノスケール、すなわち原子・分子スケールでの物理特性にはその定量的な理解には原子描像に基づく第一原理計算が不可欠である。一方で計算機の性能向上や計算技術の向上に伴い、ナノ構造に対する原子描像に基づいた理論計算による解析が精力的になされている。そこで本研究では効率的な第一原理非平衡電子輸送計算プログラムを新規に開発し、ナノ構造へ応用した。特に第一原理電子状態計算、電子輸送計算法として有効な手法である密度汎関数法および非平衡Green関数法を使用した。計算プログラムはFortran90/95/2003により実装し、並列計算による高速化、および疎行列計算に基づく高効率化を施した。計算には東京大学物性研究所共用スーパーコンピュータシステムBを利用し1024コアを用いた並列計算の動作検証を行い、良好なスケーリング特性を得られることを確認した。ここで開発されたプログラムの応用例として、近年発展が著しい有機半導体材料のポリチオフェン分子の伝導特性を解析した。特に有機分子材料は無機材料と比較して電子軌道間の結合が弱く、柔軟な分子構造を有している。有機分子材料の電子輸送特性の分子構造変化に対する依存性の理解は、基礎科学的に非常に興味深い一方で応用においても重要なデバイス設計指針となるため非常に重要である。本研究ではポリチオフェン分子ワイヤーに対し、分子面の回転による構造変化を印加した系に対する電子輸送特性を明らかにした。ポリチオフェン分子ワイヤーは他の共役系有機分子鎖同様、Fermi準位近傍の電子状態が分子面に垂直な電子軌道から構成されることから回転した分子面が平坦状の分子面と垂直になる際に伝導チャネルが抑制されることを示した。さらに系の構造変化の影響を取り入れた電流を、構造変化による系の全エネルギーの変化から電流の

熱統計平均値を解析した。温度の上昇が分子構造の大幅な変化を誘起し、電子が受ける散乱量が増加することで電流量が減少することを明らかにした。

審 査 の 要 旨

〔批評〕

本論文は5章からなり、第1章は序論、第2章では密度汎関数理論、基底関数、非平衡グリーン関数に関する理論および並列化、高効率化の計算アルゴリズムとその性能評価、第3章では強束縛近似法によるジグザググラフェンナノリボンの電子輸送特性解析、第4章では第一原理電子輸送計算によるポリチオフェン分子ワイヤーの輸送特性計算、第5章は結論である。

近年、ナノスケール系の量子輸送現象の研究が注目されている。ナノスケール系における伝導特性は量子効果が顕著に現れ、量子論に基づく理論的な方法論による解析が重要である。本論文は有限バイアス電圧下での輸送計算を行う非平衡開放系のための第一原理計算手法として、密度汎関数法を用いた局在基底および非平衡グリーン関数法による第一原理電子輸送計算プログラム開発とその応用計算を行ったものである。

数値計算プログラムの詳細について2章にまとめて述べられている。プログラムコードは **Fortran** で記述され並列計算には **MPI** を使用している。特に原子局在基底表現により現れる、疎行列に特化した格納形式を **Fortran2003** の機能により作成し、計算に必要なメモリの使用量を大幅に削減した。さらに非平衡 **Green** 関数法による計算で高負荷となる逆行列演算に対し、疎行列用の計算ルーチンを共役勾配法との組み合わせにより開発し計算不可の低減を可能し、通常行列の次元に対して3乗の計算不可を行列次元の2乗に低減した。さらにエネルギーおよび波数に対して計算を並列化することで、計算を高速化した。性能の評価には東京大学物性研究所スーパーコンピューターシステム **B** を使用し、1024 コアで990倍の高速化を実証した。この高速化された計算手法は今後の電子輸送理論を用いた応用研究にとって非常に有用である。

3章ではジグザググラフェンナノリボンの伝導計算により輸送特性におけるエッジ状態の効果について明らかにされている。さらにポリチオフェン分子ワイヤーの伝導特性解析が4章で行われ、共役系材料特有の分子面に垂直な軌道による伝導チャネルの分子構造の変化に対する振る舞いを解析している。そこで分子面に垂直な軌道により構成される伝導チャネルが分子の回転により抑制されることを明らかにした。熱電子の励起と分子振動エネルギーの増加に伴う回転角の増加の競合による効果を解析し、回転角の増加に伴う電子の散乱の増加が支配的であることを明らかにした。これらの応用計算はナノサイエンス、ナノテクノロジー研究に大きく貢献する成果として評価される。

〔最終試験結果〕

平成26年2月19日、数理物質科学研究科学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。